

明 細 書

燃料電池

技術分野

- [0001] 本発明は、固体高分子電解質を用いた燃料電池に関し、特に厚みを薄くすることのできる高分子型燃料電池に関する。

背景技術

- [0002] ポリマー電解質のような固体高分子電解質を使用した高分子型燃料電池は、高いエネルギー変換効率を持ち、薄型小型・軽量であることから、家庭用コージェネレーションシステムや自動車向けに開発が活発化している。かかる燃料電池の従来技術の構造として、図16に示すものが知られている(例えば、非特許文献1参照)。
- [0003] 即ち、図16に示すように、固体高分子電解質膜100を挟んでアノード101とカソード102とを配設する。さらに、ガスケット103を介して一对のセパレータ104により挟持して単位セル105を構成する。各々のセパレータ104にはガス流路溝が形成されており、アノード101との接触により、還元ガス(例えば、水素ガス)の流路が形成され、カソード102との接触により、酸化ガス(例えば、酸素ガス)の流路が形成される。各々のガスは、単位セル105内の各流路を流通しながら、アノード101又はカソード102の内部に担持された触媒の作用により電極反応(電極における化学反応)に供され、電流の発生とイオン伝導が生じる。
- [0004] この単位セル105を多数個積層し、単位セル105どうしを電氣的に直列に接続して燃料電池Nを構成し、電極106は、積層した両端の単位セル105から取り出すことができる。このような燃料電池Nは、クリーンかつ高効率という特徴から、種々の用途、特に、電気自動車用電源や家庭用分散型電源として注目されている。
- [0005] 一方、近年のIT技術の活発化に伴い、携帯電話、ノートパソコン、デジカメなどモバイル機器が頻繁に使用される傾向があるが、これらの電源は、ほとんどリチウムイオン二次電池が用いられている。ところが、モバイル機器の高機能化に伴って消費電力がどんどん増大し、その電源用としてクリーンで高効率な燃料電池が注目されてきている。

[0006] しかしながら、図16に示すような従来の構造では、構造に自由度が無いため、モバイル機器の電源として求められる薄型小型軽量化や形状の高自由度化に難があり、メンテナンス性が悪いという問題もあった。また、燃料電池セル内で酸化還元ガスを相互に混合させないように供給し、かつ、密閉化することが難しく、これらの条件を満たしながら、燃料電池セルの大きさや重量を低減化することは困難であった。つまり、従来、セル部品をボルト及びナットの締結部品で相互結合して、セル部品に一定の圧力を加えていたため、シール性を確保する上で、各部材の剛性を高める必要性があり、どうしても薄型化、小型化、軽量化、自由な形状設計が困難であった。

[0007] ところで、下記の特許文献1には、単位セルからなり、液体燃料をセル内に貯蔵する扁平型液体燃料電池であって、燃料極、電解質、及び酸化剤極の積層体を、その周囲をシール材で一体化し、電池ケース内に収納した構造の燃料電池が開示されている。

[0008] しかしながら、上記のセル構造では、電極を含む積層体の側壁とシール材との圧接力を十分高めることができないため、例えば水素ガス燃料を加圧して燃料極側を流通させた場合、水素ガスが酸化剤極側にリークし、発電効率の低下や水素燃焼の危険を伴うといった問題があった。つまり、燃料電池の電極は一般に多孔構造になっており、このため、上記のセル構造において、加圧された水素ガスが燃料極の内部を通り、電解質の側壁とシール材との間から、酸化剤極側にリークし易い構造となっている。

非特許文献1: 日経メカニカル別冊「燃料電池開発最前線」発行日2001年6月29日
、発行所: 日経BP社、第3章PEFC、3. 1原理と特徴p46

特許文献1: 特開昭58-176881号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0009] そこで、本発明の目的は、単位セルごとに確実に封止を行うことができ、これによって薄型化が可能となり、メンテナンスも容易になり、しかも小型軽量かつ自由な形状設計が可能な燃料電池を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0010] 上記目的は、下記の如き本発明により達成できる。

[0011] 即ち、本発明の燃料電池は、板状の固体高分子電解質と、その固体高分子電解質の一方側に配置されたカソード側電極板と、他方側に配置されたアノード側電極板と、前記カソード側電極板の表面に配置され内面側へのガスの流通を可能とするカソード側金属板と、前記アノード側電極板の表面に配置され内面側への燃料の流通を可能とするアノード側金属板と、を備える燃料電池であって、前記両側の電極板から前記固体高分子電解質の周縁部を延出させ、その周縁部をこれに対向する前記金属板によって挟持しながら、前記両側の金属板の周縁を電氣的に絶縁した状態で機械的に封止してあることを特徴とする。本発明では、例えば前記両側の金属板の周縁が、曲げプレスにより機械的に封止される。

[0012] 本発明の燃料電池によると、両側の電極板から固体高分子電解質の周縁部を延出させ、その周縁部に対向する金属板によって挟持しながら、金属板の周縁を曲げプレス等により機械的に封止してあるため、固体高分子電解質の周縁部と金属板との間に十分な圧接力が得られるので、燃料ガスがカソード側にリークするのを防止することができる。また、金属板の周縁を電氣的に絶縁した状態で曲げプレスにより封止しているため、両者の短絡を防止しながら、厚みをさほど増加させずに単位セルごとに確実に封止を行うことができる。電極板と金属板との接触により、電極反応で生じた電流を金属板から取り出すことができる。しかも図16に示す従来構造と比較してセル部材に剛性が要求されないため、各単位セルを大幅に薄型化することができる。更に、固体高分子電解質や金属板を使用するため、自由な平面形状や屈曲が可能となり、小型軽量かつ自由な形状設計が可能となる。

[0013] 本発明では、特に、前記固体高分子電解質の周縁部を延長して、封止した金属板の周縁から露出させていることが好ましい。この構造によると、曲げプレスによる封止部にも固体高分子電解質が介在するため、シール面積が増加してよりシール性が高まると共に、周縁部を延長して封止部から露出させているため、酸化還元ガスを相互に混合することが全くない。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]本発明の燃料電池の単位セルの一例を示す組み立て斜視図

[図2]本発明の燃料電池の単位セルの一例を示す正面視断面図

[図3]本発明の燃料電池の単位セルの積層状態の一例を示す図であり、(a)はチューブ取付前の斜視図、(b)はチューブ取付後の要部正面図

[図4]本発明の燃料電池の単位セルの使用例を示す図であり、(a)は左側面図、(b)はそのI-I矢視断面

[図5]本発明の燃料電池の単位セルの他の例を示す正面視断面図

[図6]本発明の燃料電池の単位セルの他の例を示す組み立て斜視図

[図7]本発明の燃料電池の単位セルの他の例を示す正面視断面図

[図8]本発明の燃料電池の単位セルの他の例を示す組み立て斜視図

[図9]本発明の燃料電池の単位セルの他の例を示す正面視断面図

[図10]本発明の燃料電池の単位セルの他の例を示す図であり、(a)は正面視断面図、(b)はそのシール部材を示す平面図

[図11]本発明の燃料電池の単位セルの他の例を示す組み立て斜視図

[図12]本発明の燃料電池の単位セルの他の例を示す正面視断面図

[図13]本発明の実施例1〜2で得られた燃料電池の電圧と出力の関係を示すグラフ

[図14]本発明の実施例3で得られた燃料電池の電圧と出力の関係を示すグラフ

[図15]本発明の実施例4で得られた燃料電池の電圧と出力の関係を示すグラフ

[図16]従来の燃料電池の一例を示す組み立て斜視図

符号の説明

| | | |
|--------|--------|----------|
| [0015] | 1 | 固体高分子電解質 |
| | 1a | 周縁部 |
| | 2, 3 | 電極板 |
| | 2a, 3a | 流路溝 |
| | 4, 5 | 金属板 |
| | 4c, 5c | 注入口 |
| | 4d, 5d | 排出口 |
| | 6 | 絶縁材料 |
| | 9 | 流路溝 |

- 9a 縦溝
9b 横溝
S1 シール部材

発明を実施するための最良の形態

- [0016] 以下、本発明の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。図1は、本発明の燃料電池の単位セルの一例を示す組み立て斜視図であり、図2は、本発明の燃料電池の単位セルの一例を示す正面視断面図である。
- [0017] 本発明の燃料電池は、図1～図2に示すように、板状の固体高分子電解質1と、その固体高分子電解質1の両側に配置された一对の電極板2、3とを備えるものである。一对の電極板2、3は、カソード側電極板2とアノード側電極板3とからなる。
- [0018] 固体高分子電解質1としては、従来の固体高分子膜型電池に用いられるものであれば何れでもよいが、化学的安定性及び導電性の点から、超強酸であるスルホン酸基を有するパーフルオロカーボン重合体からなる陽イオン交換膜が好適に用いられる。このような陽イオン交換膜としては、ナフィオン（登録商標）が好適に用いられる。
- [0019] その他、例えば、ポリテトラフルオロエチレン等のフッ素樹脂からなる多孔質膜に上記ナフィオンや他のイオン伝導性物質を含浸させたものや、ポリエチレンやポリプロピレン等のポリオレフィン樹脂からなる多孔質膜や不織布に上記ナフィオンや他のイオン伝導性物質を担持させたものでもよい。
- [0020] 固体高分子電解質1の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、イオン伝導機能、強度、ハンドリング性などを考慮すると、10～300 μm が使用可能であるが、25～50 μm が好ましい。
- [0021] 電極板2、3は、ガス拡散層としての機能を発揮して、燃料ガスや、酸化ガス及び水蒸気の供給・排出を行なうと同時に、集電の機能を発揮するものが使用できる。電極板2、3としては、同一又は異なるものが使用でき、その基材には電極触媒作用を有する触媒を担持させることが好ましい。触媒は、固体高分子電解質1と接する内面2b、3bに少なくとも担持させるのが好ましい。
- [0022] 電極基材としては、例えば、カーボンペーパー、カーボン繊維不織布などの繊維質カーボン、導電性高分子繊維の集合体などの電導性多孔質材が使用できる。一般

に、電極板2, 3は、このような電導性多孔質材にフッ素樹脂等の撥水性物質を添加して作製されるものであって、触媒を担持させる場合、白金微粒子などの触媒とフッ素樹脂等の撥水性物質とを混合し、これに溶媒を混合して、ペースト状或いはインク状とした後、これを固体高分子電解質膜と対向すべき電極基材の片面に塗布して形成される。

- [0023] 一般に、電極板2, 3や固体高分子電解質1は、燃料電池に供給される還元ガスと酸化ガスに応じた設計がなされる。本発明では、酸化ガスとして酸素ガスや空気が用いられると共に、還元ガスとして水素ガスや用いられる。また、還元ガスの代わりに、メタノールやジメチルエーテル等を用いることもできる。
- [0024] 例えば、水素ガスと空気を使用する場合、空気を供給する側の電極(空気極)では、酸素と水素イオンの反応が生じて水が生成するため、かかる電極反応に応じた設計をするのが好ましい。特に、低作動温度、高電流密度及び高ガス利用率の運転条件では、特に水が生成する空気極において水蒸気の凝縮による電極多孔体の閉塞(フラッディング)現象が起こりやすい。したがって、長期にわたって燃料電池の安定な特性を得るためには、フラッディング現象が起こらないように電極の撥水性を確保することが有効である。
- [0025] 触媒としては、白金、パラジウム、ルテニウム、ロジウム、銀、ニッケル、鉄、銅、コバルト及びモリブデンから選ばれる少なくとも1種の金属か、又はその酸化物が使用でき、これらの触媒をカーボンブラック等に予め担持させたものも使用できる。
- [0026] 電極板2, 3の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、電極反応、強度、ハンドリング性などを考慮すると、50〜500 μ mが好ましい。
- [0027] 電極板2, 3と固体高分子電解質1とは、予め接着、融着等を行って積層一体化しておいてもよいが、単に積層配置されているだけでもよい。このような積層体は、薄膜電極組立体(Membrane Electrode Assembly:MEA)として入手することもでき、これを使用してもよい。
- [0028] 前記電極板2, 3の両側には、一対の金属板4, 5が配置されている。一対の金属板4, 5は、カソード側電極板2の表面に配置され内面側へのガスの流通を可能とするカソード側金属板4と、アノード側電極板3の表面に配置され内面側への燃料の流通

を可能とするアノード側金属板5とからなる。本実施形態では、金属板4, 5には流路溝9と、これに連通する注入口4c, 5c及び排出口4d, 5dが設けられている。

[0029] 金属板4, 5としては、電極反応に悪影響がないものであれば何れの金属も使用できる。但し、伸び、重量、弾性率、強度、耐腐食性、プレス加工性、エッチング加工性などの観点から、ステンレス板、ニッケルなどが好ましい。

[0030] 金属板4, 5に設けられる流路溝9は、電極板2, 3との接触により水素ガス等の流露が形成できるものであれば何れの平面形状や断面形状でもよい。但し、流路密度、積層時の積層密度、屈曲性などを考慮すると、金属板4, 5の一辺に平行な縦溝9aと垂直な横溝9bを主に形成するのが好ましい。本実施形態では、複数本(図示した例では3本)の縦溝9aが横溝9bに直列接続されるようにして、流路密度と流路長のバランスを取っている。

[0031] なお、このような金属板4, 5の流路溝9の一部(例えば横溝9b)を電極板2, 3の外面に形成してもよい。電極板2, 3の外面に流路溝2a, 3aを形成する方法としては、加熱プレスや切削などの機械的な方法でもよいが、微細加工を好適に行う上で、レーザ照射によって溝加工を行うことが好ましい。レーザ照射を行う観点からも、電極板2, 3の基材としては、繊維質カーボンの集合体が好ましい。

[0032] 金属板4, 5の流路溝9に連通する注入口4c, 5c及び排出口4d, 5dは、それぞれ1個又は複数を形成することができる。なお、金属板4, 5の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、強度、伸び、重量、弾性率、ハンドリング性などを考慮すると、50〜500 μ mが好ましい。

[0033] 金属板4, 5に流路溝9を形成する方法としては、プレス加工、切削などの機械的な方法やエッチングなどの化学的な方法が挙げられる。本実施形態では、プレス加工による金属板の変形により流路溝9が形成されている例を示す。金属板4, 5への溝形成をプレス加工で行うことで、コスト的に有利に金属板4, 5を製造できるようになる。また、プレス加工で溝形成した金属板4, 5は厚みの増加を最小限にすることができ、単位セルごとに確実に封止を行うことと併せて、燃料電池のより薄型化が可能となる。

図1の金属板4の上面には、プレス加工による流路溝9の凸条9cが示されている。

- [0034] 特に、プレス加工による流路溝9では、幅0.1〜10mm、深さ0.1〜10mmが好ましい。また、流路溝9の断面形状は、略四角形、略台形、略半円形、V字形などが好ましい。
- [0035] 本発明では、前記両側の電極板4, 5から固体高分子電解質1の周縁部1aを延出させ、その周縁部1aをこれに対向する前記金属板4, 5によって挟持しながら、前記両側の金属板4, 5の周縁を電氣的に絶縁した状態で機械的に封止してある。機械的な封止は、例えば曲げプレス、即ち所謂カシメにより行うことができる。本実施形態では、固体高分子電解質1の周縁部1aが絶縁材料6を介在させつつ金属板4, 5によって挟持されると共に、金属板4, 5の周縁が、絶縁材料6を介在させつつカシメにより封止されている例を示す。
- [0036] 本発明では、カシメを行う際、図2に示すように、金属板4, 5の周縁によって固体高分子電解質1を挟持する構造が好ましく、絶縁材料6を介在させつつ固体高分子電解質1を挟持する構造がより好ましい。このような構造によると、電極板2, 3の一方から他方へのガス等の流入を効果的に防止することができる。
- [0037] 絶縁材料6としては、シート状の樹脂、ゴム、熱可塑性エラストマー、セラミックスなどが使用できるが、シール性を高める上で、樹脂、ゴム、熱可塑性エラストマーなどが好ましい。絶縁材料6は、金属板4, 5の周縁に直接あるいは粘着剤を介して貼着したり、塗布したりして、予め金属板4, 5に一体化しておくことも可能である。
- [0038] カシメ構造としては、シール性や製造の容易性、厚み等の観点から図2に示すものが好ましい。つまり、一方の金属板5の外縁部5aを他方の外縁部4aより大きくしておき、絶縁材料6を介在させつつ、一方の金属板5の外縁部5aを他方の金属板4の外縁部4aを挟圧するように折り返したカシメ構造が好ましい。このカシメ構造では、プレス加工等によって、金属板4の外縁部4aに段差を設けておくのが好ましい。このようなカシメ構造自体は金属加工として公知であり、公知のカシメ装置によって、それを形成することができる。
- [0039] 本発明では、図2に示すような単位セルUCを1個又は複数個使用することができるが、固体高分子電解質1、一对の電極板2, 3、及び一对の金属板4, 5で単位セルUCを構成し、この単位セルUCを複数積層してあることが好ましい。本発明によると、

ボルト及びナットの締結部品で相互結合して、セル部品に一定の圧力を加えなくても、高出力の燃料電池を提供することができる。

[0040] 複数積層する場合、単位セルUCどうしの間に、ガス等の流路を形成できるスペーサを設けて積層することも可能であるが、図3に示すように、スペーサを介在させずに積層することが薄型化や設計の自由度の点から好ましい。

[0041] また、金属板4, 5の流路溝9の凸条9cを等間隔で平行に形成しておき、各々の単位セルUCの凸条9cが相互に嵌まり合うようにすることが好ましい。これによって、単位セルUCの積層時の厚みをより低減することができる。

[0042] 図3に示す実施形態では、単位セルUC(金属板4, 5)の一边付近に水素ガス等の注入口4c及び排出口4dを設け、対向する一边の裏側に空気等の注入口5c及び排出口5dを設けておき、これらが露出するように各々の単位セルUCをずらして積層している。この状態で図3(b)に示すように、主管11から分岐管12が分岐したチューブ10の分岐管12を注入口4cに接続することで、水素ガス等の注入を行うことができる。このようなチューブ10を注入口5c、排出口4d、排出口5dに接続することで、酸化ガスと還元ガスの注入・排出が可能となる。

[0043] 一方、金属板同士が接触することで、単位セルUCが直列に接続されることになり、両端の単位セルUCから、積層数に応じた電圧の電流を取り出すことができる。また、複数の単位セルUCごとスペーサを設けて(図示省略)、単位セルUCごとに電流を取り出すことも可能である。

[0044] また、単位セルを使用する際、金属板の燃料の注入口及び排出口には、直接、燃料供給用のチューブを接合することも可能であるが、燃料電池の薄型化を行う上で、厚みが小さく、金属板の表面に平行なパイプを有するチューブジョイントを設けるのが好ましい。

[0045] 本発明の燃料電池は、薄型化が可能で小型軽量かつ自由な形状設計が可能のため、特に、携帯電話、ノートPC等のモバイル機器に好適に使用することができる。

[0046] また、電流を取り出す際に、図4(a)～(b)に示すような実施形態とすることができる。つまり、一方の金属板5の外縁部5aを他方の金属板の外縁部4aより大きくして、前記一方の金属板5の外縁部5aにより前記他方の金属板4の外縁部4aを挟圧するよう

に折り返したカシメ構造を有すると共に、前記他方の金属板4の表面と前記折り返した外縁部5aの表面とを、電流の取り出し部(例えば正極又は負極)としてもよい。その場合、図示したように、他方の金属板4の表面と折り返した外縁部5aの表面(図では上面)とを面一または略面一とするのが好ましい。これによって、電流の取り出し部と、電池ホルダー側の接点端子等との接触が、より好適に行えるようになる。

[0047] また、図4(a)～(b)に示す実施形態では、電子機器類などの装置本体側に固定された板バネ製の接点端子21, 22が、電池セルの電流取り出し部と接触することで、リード線23, 24により電流を取り出すことができる。

[0048] 但し、電流の取り出し形態は何れでもよく、電池セルに直線、リード線を半田で接合したり、電池セルにコネクタを設けたりすることも可能である。

[0049] [他の実施形態]

以下、本発明の他の実施形態について説明する。

[0050] (1) 前述の実施形態では、金属板には、プレス加工により形成された流路溝と、その流路溝に連通する注入口及び排出口が設けられている例を示したが、本発明では、図5に示すように、金属板4, 5に対し、エッチングにより形成された流路溝9と、その流路溝9に連通する注入口4c, 5c及び排出口4d, 5dを設けるのが好ましい。金属板4, 5への溝形成をエッチングにより行うことで、剛性の高い金属板にも容易に溝形成が可能となり、その剛性のため薄膜電極組立体に対して圧力をかけやすくなり、ガス漏れを少なくすることができ、高い出力(図13参照)を得ることができる。

[0051] エッチングによる流路溝9では、幅0.1～10mm、深さ0.05～1mmが好ましい。また、流路溝9の断面形状は、略四角形、略台形、略半円形、V字形などが好ましい。

[0052] エッチングは、例えばドライフィルムレジストなどを用いて、金属表面に所定形状のエッチングレジストを形成した後、金属板4, 5の種類に応じたエッチング液を用いて行うことが可能である。また、2種以上の金属の積層板を用いて、金属ごとに選択的にエッチングを行うことで、流路溝9の断面形状をより高精度に制御することができる。なお、流路溝9に連通する注入口4c, 5c及び排出口4d, 5dなどを、エッチングで形成することも可能である。

- [0053] 図5に示す実施形態は、金属板4, 5のカシメ部のSUSもエッチングにより厚みを薄くした例である。このように、カシメ部をエッチングして適切な厚さにすることで、カシメによる封止をより容易に行うことができる。この観点から、カシメ部の厚みとしては、0.05〜0.3mmが好ましい。
- [0054] (2)前述の実施形態では、電極板の表面に配置される金属板に、燃料等の流路溝を形成する例を示したが、本発明では、図6〜図7に示すように、電極板2, 3の側に燃料等の流路溝2a, 3aを形成してもよい。そして、カソード側電極板2及び／又はアノード側電極板3の外面には、流路溝2a, 3aが形成されると共に、その表面に配置される金属板4, 5には、前記流路溝2a, 3aに連通する注入口4c, 5c及び排出口4d, 5dが設けられているのが好ましい。
- [0055] 電極板2, 3の外面に流路溝2a, 3aを形成する方法としては、加熱プレスや切削などの機械的な方法でもよいが、微細加工を好適に行う上で、レーザ照射によって溝加工を行うことが好ましい。レーザ照射を行う観点からも、電極板2, 3の基材としては、繊維質カーボンの集合体が好ましい。
- [0056] 電極板2, 3の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、電極反応、強度、ハンドリング性などを考慮すると、50〜500 μm が使用可能であるが、200〜350 μm が好ましい。また、流路溝2a, 3aの深さは、十分な流路を確保する上で100〜500 μm が好ましい。
- [0057] この実施形態では、電極板2, 3は、繊維質カーボンの集合体の少なくとも片面に触媒が担持され、その他面に、レーザ照射によって前記繊維質カーボンが除去された流路溝が形成されていることが好ましい。
- [0058] このように、繊維質カーボンの集合体を電極材として使用することにより、ガスの拡散性や集電効率が良好になり、担持された触媒によって電極反応を促進することができる。また、繊維質カーボンはレーザ照射などの方法によって微細加工することができ、繊維質カーボンが除去された流路溝が形成されるため、プレス加工により得られる電極板と比較して、ガスの拡散性を維持しながら、微細なガス流路を形成することができる。
- [0059] (3)前述の実施形態では、カソード側の金属板又は電極板に、空気等のガスの流

路溝を形成する例を示したが、本発明では、カソード側の流路溝を省略することも可能である。つまり、金属板4, 5には、必要に応じて流路溝、燃料やガスの注入口や排出口、開口部などを設けることができ、例えば空気を開口部から自然供給したり、燃料ガスの排出口を省略することも可能である。

[0060] 例えば、図8～図9に示すように、カソード側の金属板4には、流路溝を設けることなく、空気中の酸素を供給するための開口部4eを設けてもよい。開口部4eは、カソード側電極板2が露出可能であれば、その個数、形状、大きさ、形成位置などは何れでもよい。但し、空気中の酸素の供給効率と、カソード側電極板2からの集電効果などを考慮すると、開口部4eの面積はカソード側電極板2の面積の10～50%であるのが好ましく、特に20～40%であるのが好ましい。カソード側金属板4の開口部4cは、例えば規則的又はランダムに複数の円孔やスリット等を設けたり、または金属メッシュによって開口部を設けてもよい。

[0061] カシメ構造については、図2と同じであるので説明を省略する。アノード側金属板5の流路構成は図1～2に示すのと同じである。

[0062] (4) 前述の実施形態では、図2に示すように、固体高分子電解質1の周縁部1aが絶縁材料6を介在させつつ金属板4, 5によって挟持されている例を示したが、本発明では、金属板4, 5によって直接周縁部1aを挟持する構造であってもよい。また、両者の間にシール部材を介在させてもよい。特に、固体高分子電解質の厚みがより薄い場合に、このようにシール部材を介して、これを両側の金属板同士で挟持することにより、固体高分子電解質の両側の流体(例えば燃料ガスと酸化ガス)の混合やリークが効果的に防止できる。

[0063] シール部材を介在させる場合、図10(a)～(b)に示すような形態で、シール部材S1を介在させてもよい。この実施形態では、固体高分子電解質1の周縁部1aを、環状のシール部材S1を介して、両側の金属板4, 5同士で挟持している。このとき、特に金属板4, 5の外縁部4a, 5aで挟持するのが、挟持圧を高めてシール性を向上させる観点から好ましい。

[0064] 環状のシール部材S1は、図10(b)に示すように、固体高分子電解質1の周縁部1aに沿った環状形状をなしており、カシメ構造との関係から、外周の4隅が丸みを帯び

た形状となっている。シール部材S1は、単に挟持するだけでもよいが、金属板4, 5や固体高分子電解質1の周縁に直接あるいは粘着剤を介して貼着してもよい。

[0065] 環状のシール部材S1の厚みは、固体高分子電解質1の厚みにもよるが、20〜200 μm が好ましい。また、シール部材S1の材質としては、弾性を有する材料が好ましく、シリコーン系樹脂、フッ素系樹脂などの樹脂、ゴム、熱可塑性エラストマーなどが好ましい。

[0066] (5) 前述の実施形態では、固体高分子電解質の周縁部を封止した金属板の周縁から露出させない例を示したが、本発明では、図11〜図12に示すように、固体高分子電解質1の周縁部1aを延長して、封止した金属板4, 5の周縁から露出させてもよい。この場合、前述の実施形態のように別途絶縁材料を設けてもよいが、絶縁材料を設けなくても、固体高分子電解質1のみによって、金属板4, 5間の短絡を防止することができる。

[0067] [実施例]

以下に実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれら実施例になんら限定されるものではない。

[0068] [実施例1]

耐食性を有するSUS (50mm×26mm×0.08mm厚) に溝 (幅0.8mm、深さ0.2mm、間隔1.6mm) をプレス加工により21個設けた。そして絶縁シート (50mm×26mm×2mm幅、厚み80 μm) をSUSに張り合わせた。また、薄膜電極組立体 (49.3mm×25.3mm) は、下記のようにして作製した。白金触媒は、米国エレクトロケム社製20%白金担持カーボン触媒 (EC-20-PTC) を用いた。この白金触媒と、カーボンブラック (アクゾ社ケッチェンブラックEC)、ポリフッ化ビニリデン (カイナー) を、それぞれ75重量%、15重量%、10重量%の割合で混合し、ジメチルホルムアミドを、2.5重量%のポリフッ化ビニリデン溶液となるような割合で、上記白金触媒、カーボンブラック、ポリフッ化ビニリデンの混合物中に加え、乳鉢中で溶解・混合して、触媒ペーストを作製した。カーボンペーパー (東レ製TGP-H-90、厚み370 μm) を20mm×43mmに切断し、この上に、上記のようにして作製した触媒ペースト約20mgをスパチュラにて塗布し、80℃の熱風循環式乾燥機中で乾燥した。このようにして4

mgの触媒組成物が担持されたカーボンペーパーを作製した。白金担持量は、 0.6 mg/cm^2 である。

[0069] 上記のようにして作製した白金触媒担持カーボンペーパーと、固体高分子電解質(陽イオン交換膜)としてナフィオンフィルム(デュポン社製ナフィオン112)($25.3 \text{ mm} \times 49.3 \text{ mm}$ 、厚み $50 \mu\text{m}$)を用い、その両面に、金型を用いて、 135°C 、 2 MPa の条件にて2分間ホットプレスした。こうして得られた薄膜電極組立体を上記のSUS板2枚の中央で挟み込み、図2に示すようにカシメ合わせることで、外寸 $50 \text{ mm} \times 26 \text{ mm} \times 1.4 \text{ mm}$ 厚という薄型小型のマイクロ燃料電池を得る事ができた。

[0070] このマイクロ燃料電池の電池特性を評価した。燃料電池特性は、東陽テクニカ製燃料電池評価システムを用い、室温下、純水素ガス、純酸素ガスを用いて評価した。ガス流量は、 0.2 L/min とした。得られた最大出力密度は、電極面積当たり 400 mW/cm^2 であった(図13)。そして6個の燃料電池セルを積層することで直列接続となり、燃料電池として 18 W の出力が得られた。本発明の特長は、厚さ 1.4 mm で薄くかつ単位電極面積当たり 400 mW/cm^2 と高出力が得られるところにある。

[0071] [実施例2]

異なる厚みのSUS($50 \text{ mm} \times 26 \text{ mm} \times 0.3 \text{ mm}$ 厚)を用い、その加工法を塩化第二鉄水溶液によるエッチングに変えて、溝(幅 0.8 mm 、深さ 0.2 mm 、間隔 1.6 mm)を形成すること以外は、実施例1と同様にして、図4に示す薄型小型のマイクロ燃料電池を得た。なお、図4において、カシメ部のSUSもエッチングにより厚みを薄くした(厚み 0.1 mm)。

[0072] このマイクロ燃料電池の電池特性を実施例1と同様に評価した。得られた最大出力密度は、電極面積当たり 450 mW/cm^2 であった(図13)。そして6個の燃料電池セルを積層することで直列接続となり、燃料電池として 20 W の出力が得られた。本発明の特長は、厚さ 1.4 mm で薄くかつ単位電極面積当たり 450 mW/cm^2 と高出力が得られるところにある。

[0073] [参考例1]

実施例2において、固体高分子電解質の厚みを $25 \mu\text{m}$ (実施例2の $1/2$)とすること以外は、同様にして燃料電池を作製し、その際、図10(b)に示す形状のシール部

材(材質:フッ素樹脂、厚み100 μ m)を用いた場合と用いない場合とで、セル内のガス混合の有無とセル外へのガス漏れの有無とを調べた。

[0074] その結果、シール部材を用いると10/10の割合でガス混合及びガス漏れが発生せず、これに対して、シール部材を用いないと4/10の割合でガス混合が発生し、3/10の割合でガス漏れが発生した。

[0075] [実施例3]

耐食性を有するSUS(50mm×26mm×0.08mm厚)を用い、そして絶縁シート(50mm×26mm×2mm幅、厚み70 μ m)をSUSに張り合わせた。また、薄膜電極組立体(49.3mm×25.3mm)は、下記のようにして作製した。白金触媒は、米国エレクトロケム社製20%白金担持カーボン触媒(EC-20-PTC)を用いた。この白金触媒と、カーボンブラック(アクゾ社ケッチェンブラックEC)、ポリフッ化ビニリデン(カイナー)を、それぞれ75重量%、15重量%、10重量%の割合で混合し、ジメチルホルムアミドを、2.5重量%のポリフッ化ビニリデン溶液となるような割合で、上記白金触媒、カーボンブラック、ポリフッ化ビニリデンの混合物中に加え、乳鉢中で溶解・混合して、触媒ペーストを作製した。カーボンペーパー(東レ製TGP-H-90、厚み370 μ m)を20mm×43mmに切断し、この上に、上記のようにして作製した触媒ペースト約20mgをスパチュラにて塗布し、80℃の熱風循環式乾燥機中で乾燥した。このようにして4mgの触媒組成物が担持されたカーボンペーパーを作製した。白金担持量は、0.6mg/cm²である。

[0076] 上記のようにして作製した白金触媒担持カーボンペーパーの触媒層と反対側に半導体レーザを用い溝加工(幅:2.3mm、深さ0.2mm、間隔:2.3mm)を施した。そして、固体高分子電解質(陽イオン交換膜)としてナフィオンフィルム(デュポン社製ナフィオン112)(25.3mm×49.3mm、厚み50 μ m)を用い、その両面に、金型を用いて、135℃、2MPaの条件にて2分間ホットプレスした。こうして得られた薄膜電極組立体を上記のSUS板2枚の中央で挟み込み、図7に示すようにカシメ合わせることで、外寸50mm×26mm×1.0mm厚という薄型小型のマイクロ燃料電池を得る事ができた。

[0077] このマイクロ燃料電池の電池特性を評価した。燃料電池特性は、東陽テクニカ製燃

料電池評価システムを用い、室温下、純水素ガス、純酸素ガスを用いて評価した。ガス流量は、0.2L/minとした。得られた最大出力密度は、電極面積当たり380mW/cm²であった(図14)。そして6個の燃料電池セルを積層することで直列接続となり、燃料電池として17.5Wの出力が得られた。本発明の特長は、厚さ1.0mmで薄くかつ単位電極面積当たり380mW/cm²と高出力が得られ、エンドプレートが平面であるために、容易に積層でき直列接続できるというところにある。

[0078] 〔実施例4〕

耐食性を有するSUS(50mm×26mm×0.08mm厚)に溝(幅0.8mm、深さ0.2mm、間隔1.6mm)をプレス加工により21個設けた。また、薄膜電極組立体(52.3mm×28.3mm)は、下記のようにして作製した。白金触媒は、米国エレクトロケム社製20%白金担持カーボン触媒(EC-20-PTC)を用いた。この白金触媒と、カーボンブラック(アクゾ社ケッチェンブラックEC)、ポリフッ化ビニリデン(カイナー)を、それぞれ75重量%、15重量%、10重量%の割合で混合し、ジメチルホルムアミドを、2.5重量%のポリフッ化ビニリデン溶液となるような割合で、上記白金触媒、カーボンブラック、ポリフッ化ビニリデンの混合物中に加え、乳鉢中で溶解・混合して、触媒ペーストを作製した。カーボンペーパー(東レ製TGP-H-90、厚み370μm)を20mm×43mmに切断し、この上に、上記のようにして作製した触媒ペースト約20mgをスパチュラにて塗布し、80℃の熱風循環式乾燥機中で乾燥した。このようにして4mgの触媒組成物が担持されたカーボンペーパーを作製した。白金担持量は、0.6mg/cm²である。

[0079] 上記のようにして作製した白金触媒担持カーボンペーパーと、固体高分子電解質(陽イオン交換膜)としてナフィオンフィルム(デュポン社製ナフィオン112)(52.3mm×28.3mm、厚み25μm)を用い、その両面に、金型を用いて、135℃、2MPaの条件にて2分間ホットプレスした。こうして得られた薄膜電極組立体を上記のSUS板2枚の中央で挟み込み、図12に示すようにカシメ合わせることで、外寸50mm×26mm×1.4mm厚という薄型小型のマイクロ燃料電池を得る事ができた。

[0080] このマイクロ燃料電池の電池特性を評価した。燃料電池特性は、東陽テクニカ製燃料電池評価システムを用い、室温下、純水素ガス、空気を用いて評価した。水素ガス

流量は、0.1L/minとした。空気流量は0.2L/minとした。そして単位セルあたりの出力特性は図15に示される。本発明によるカシメ構造を利用することで、十分に実用化できるだけの特性が得られた。

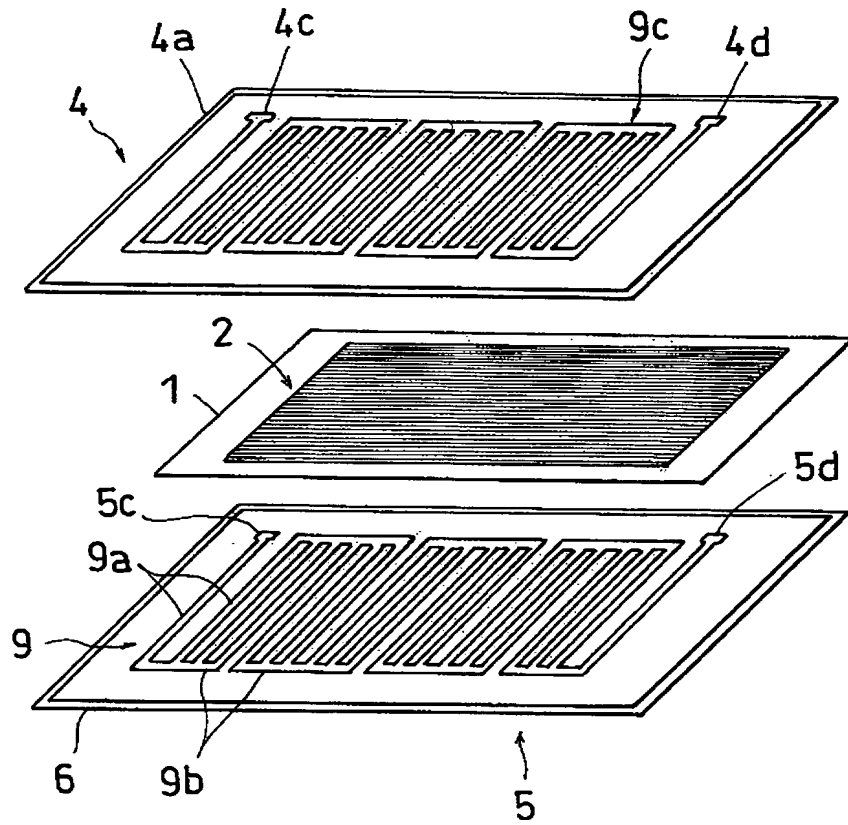
請求の範囲

- [1] 板状の固体高分子電解質と、その固体高分子電解質の一方側に配置されたカソード側電極板と、他方側に配置されたアノード側電極板と、前記カソード側電極板の表面に配置され内面側へのガスの流通を可能とするカソード側金属板と、前記アノード側電極板の表面に配置され内面側への燃料の流通を可能とするアノード側金属板と、を備える燃料電池であって、
前記両側の電極板から前記固体高分子電解質の周縁部を延出させ、その周縁部をこれに対向する前記金属板によって挟持しながら、前記両側の金属板の周縁を電氣的に絶縁した状態で機械的に封止してある燃料電池。
- [2] 前記両側の金属板の周縁が、曲げプレスにより機械的に封止されている請求項1記載の燃料電池。
- [3] 前記アノード側金属板には、プレス加工により形成された流路溝と、その流路溝に連通する注入口及び排出口が設けられている請求項1記載の燃料電池。
- [4] 前記アノード側金属板には、エッチングにより形成された流路溝と、その流路溝に連通する注入口及び排出口が設けられている請求項1記載の燃料電池。
- [5] 前記カソード側電極板及び／又は前記アノード側電極板の外面には、流路溝が形成されると共に、その表面に配置される金属板には、前記流路溝に連通する注入口及び排出口が設けられている請求項1記載の燃料電池。
- [6] 前記カソード側電極板及び／又は前記アノード側電極板は、繊維質カーボンの集合体の少なくとも片面に触媒が担持され、その他面に、レーザ照射によって前記繊維質カーボンが除去された流路溝が形成されている請求項5記載の燃料電池。
- [7] 前記固体高分子電解質の周縁部を延長して、封止した金属板の周縁から露出させている請求項1記載の燃料電池。
- [8] 前記金属板の周縁と前記固体高分子電解質の周縁部との間に、更に絶縁材料を介在させている請求項7に記載の燃料電池。
- [9] 前記アノード側金属板又はカソード側金属板の少なくとも一方の周縁部は、エッチングにより他の部分よりも厚みを薄くしている請求項1記載の燃料電池。
- [10] 前記カソード側金属板には、空気中の酸素を供給するための開口部が設けられて

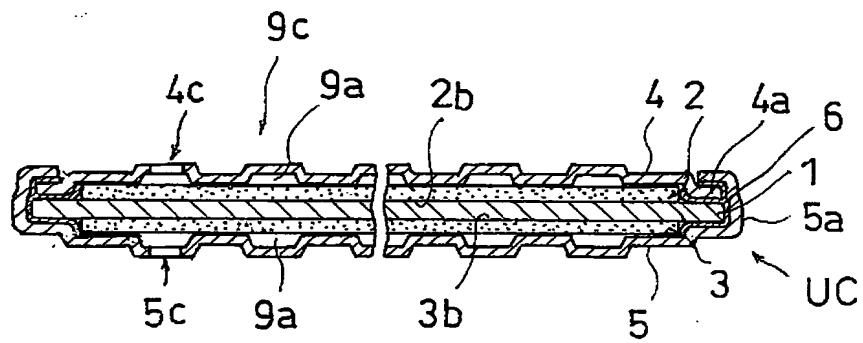
いる請求項1記載の燃料電池。

- [11] 前記固体高分子電解質の周縁部を、環状のシール部材を介して、両側の金属板同士で挟持している請求項1記載の燃料電池。
- [12] 一方の金属板の外縁部を他方の金属板の外縁部より大きくして、前記一方の金属板の外縁部により前記他方の金属板の外縁部を挟圧するように折り返した構造を有すると共に、前記他方の金属板の表面と前記折り返した外縁部の表面とを、電流の取り出し部とした請求項1記載の燃料電池。

[図1]

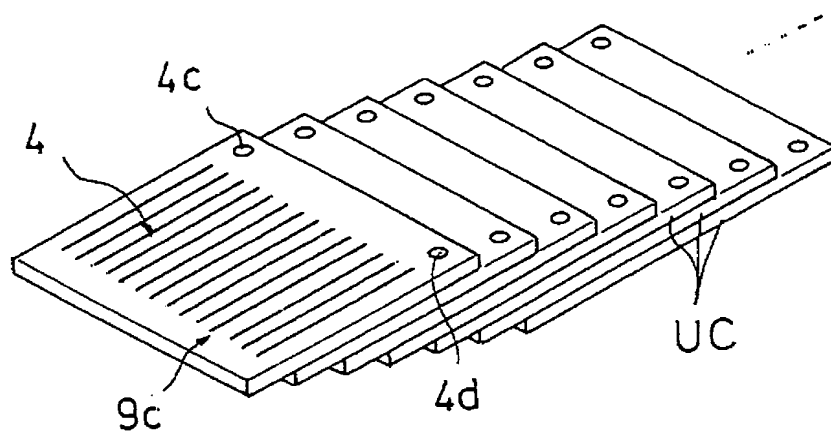


[図2]

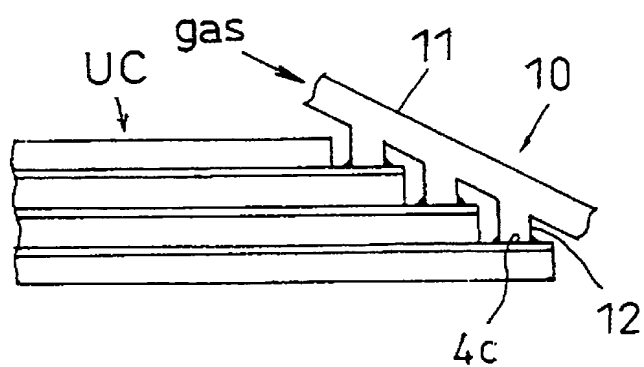


[図3]

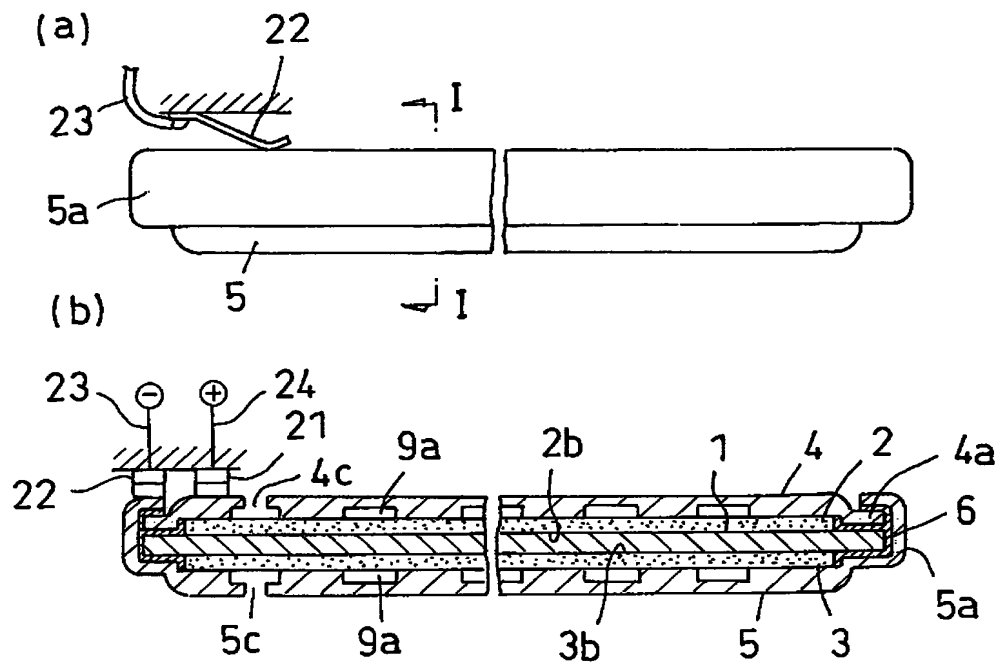
(a)



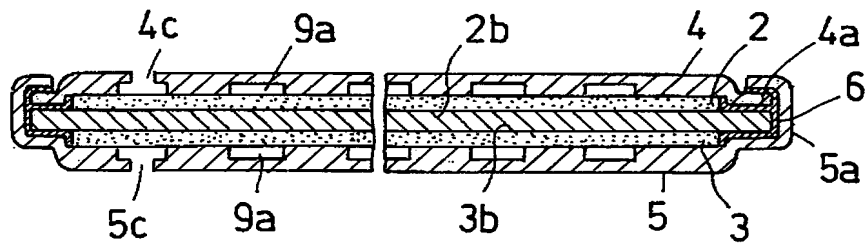
(b)



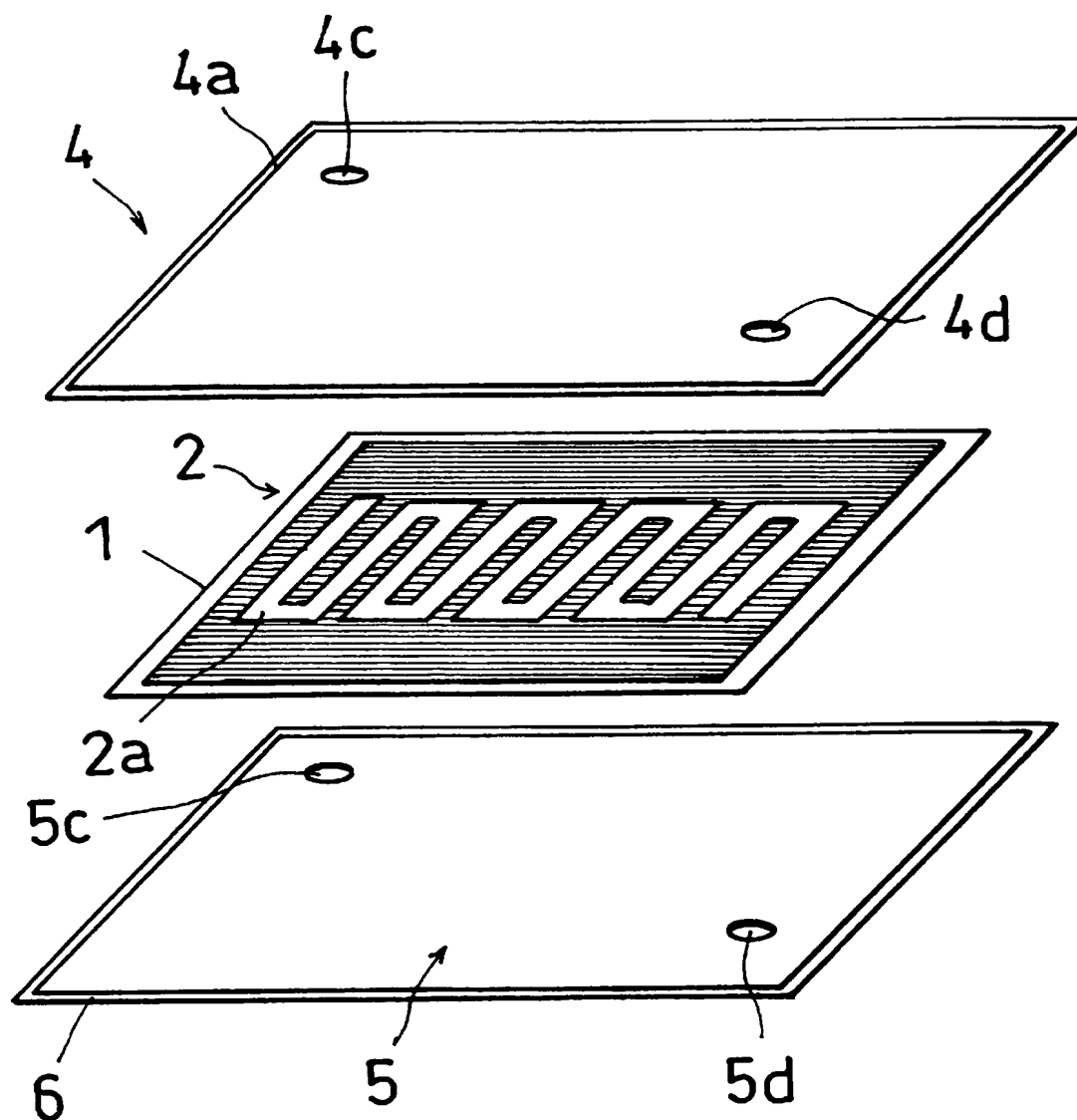
[図4]



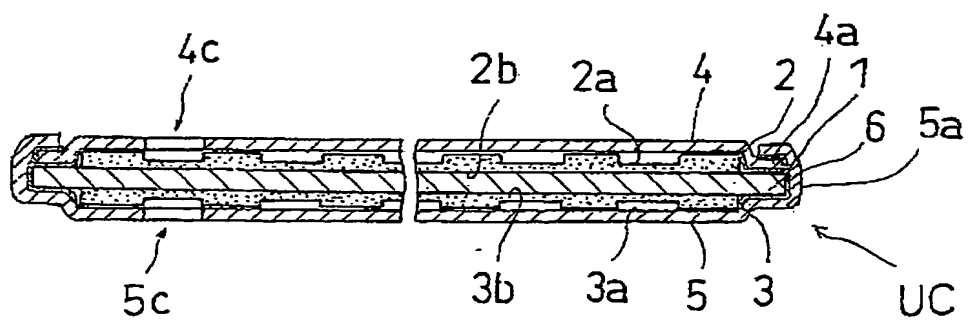
[図5]



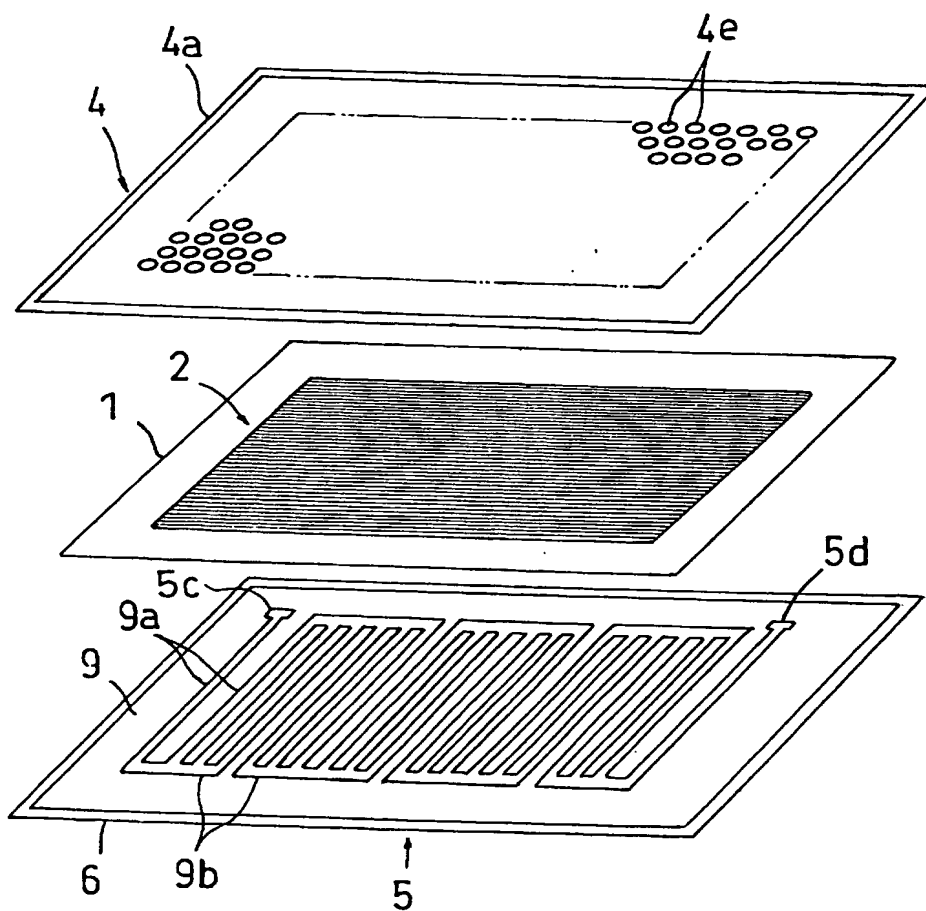
[[6]]



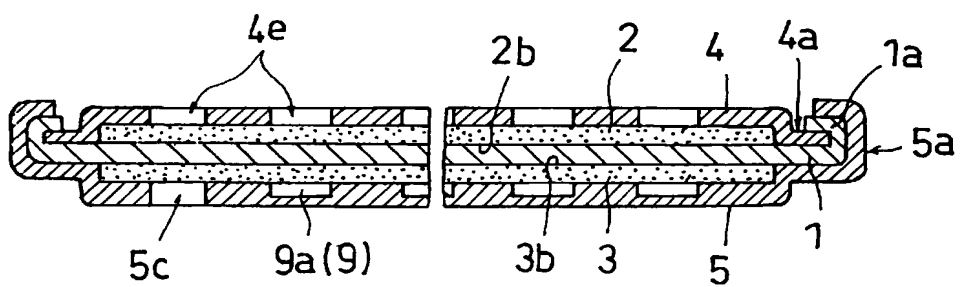
[[7]]



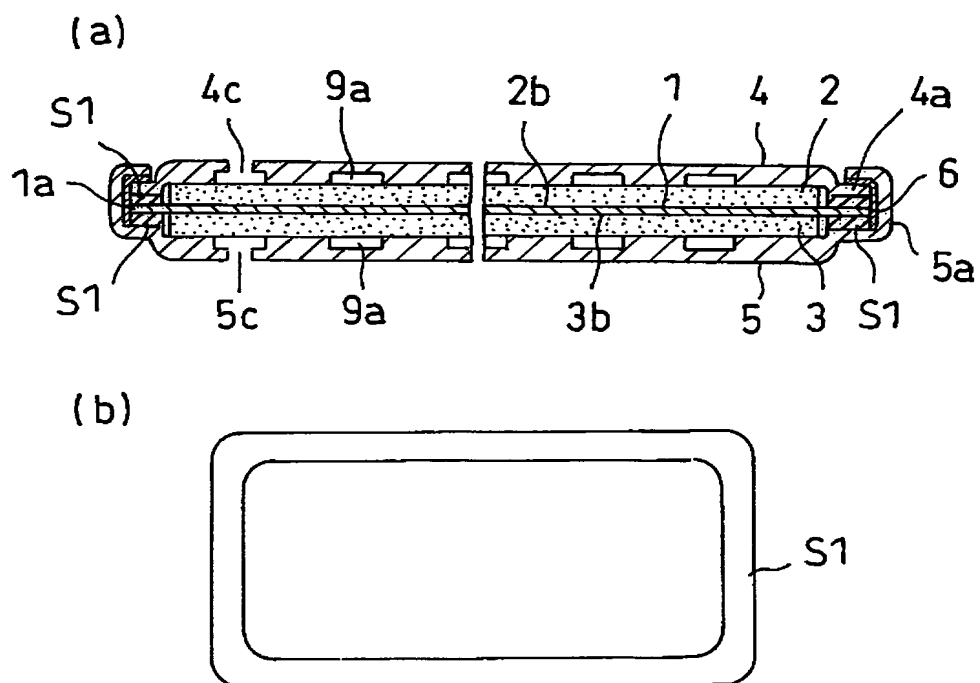
[図8]



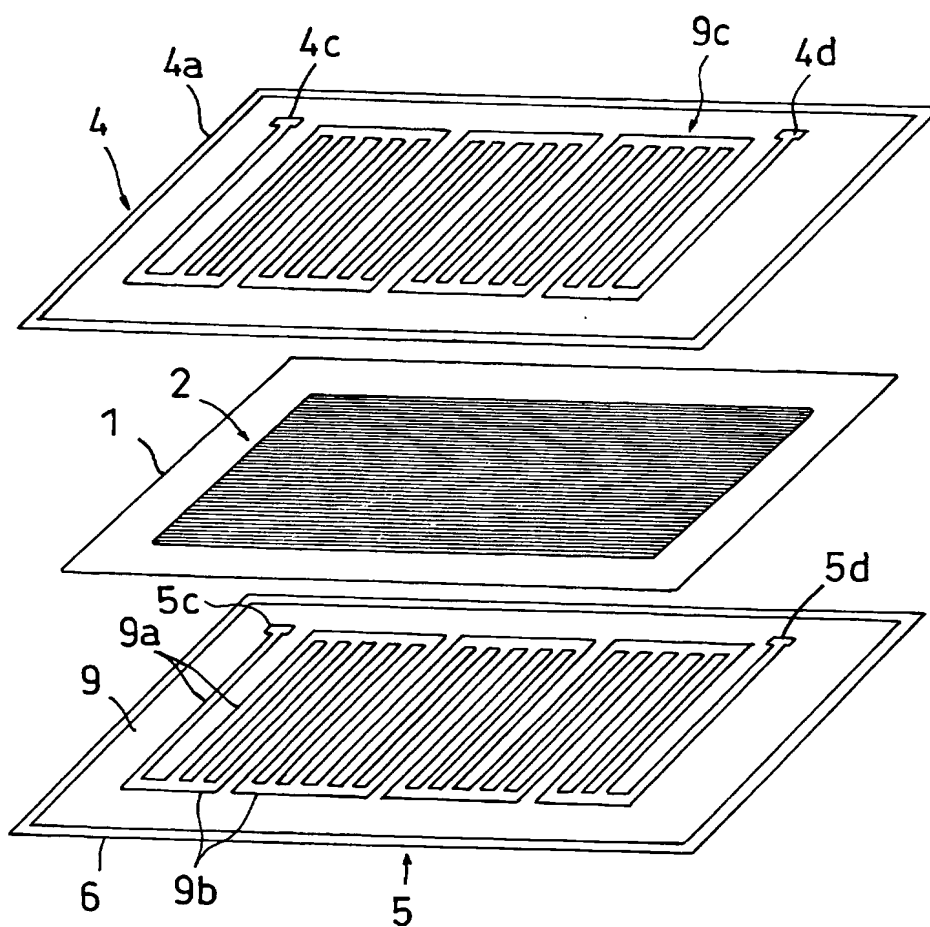
[図9]



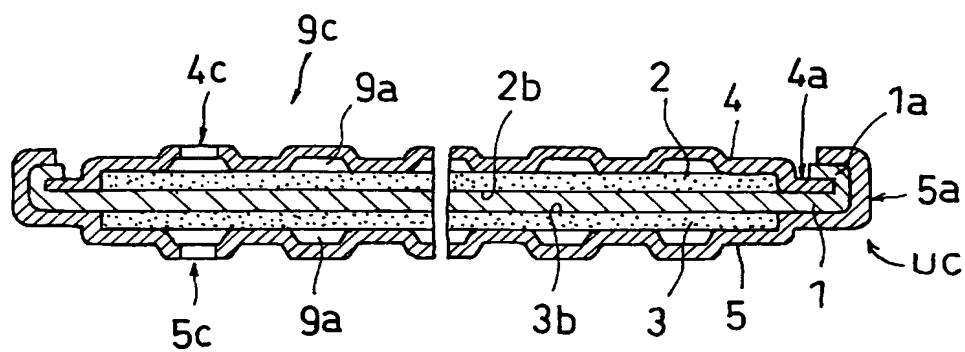
[図10]



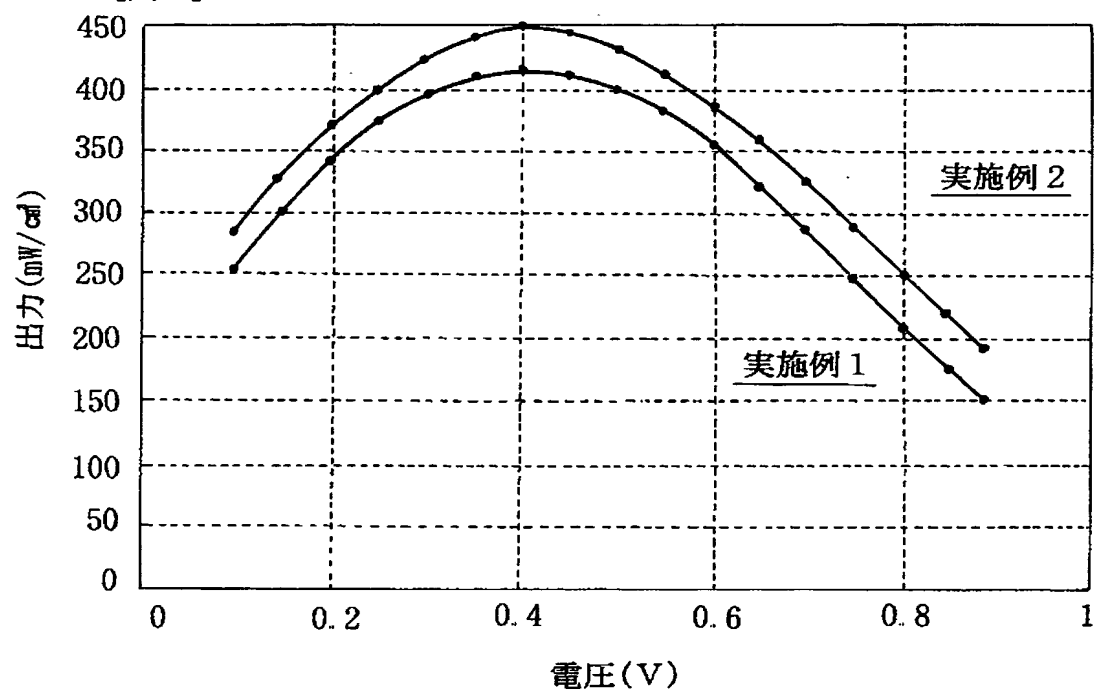
[図11]



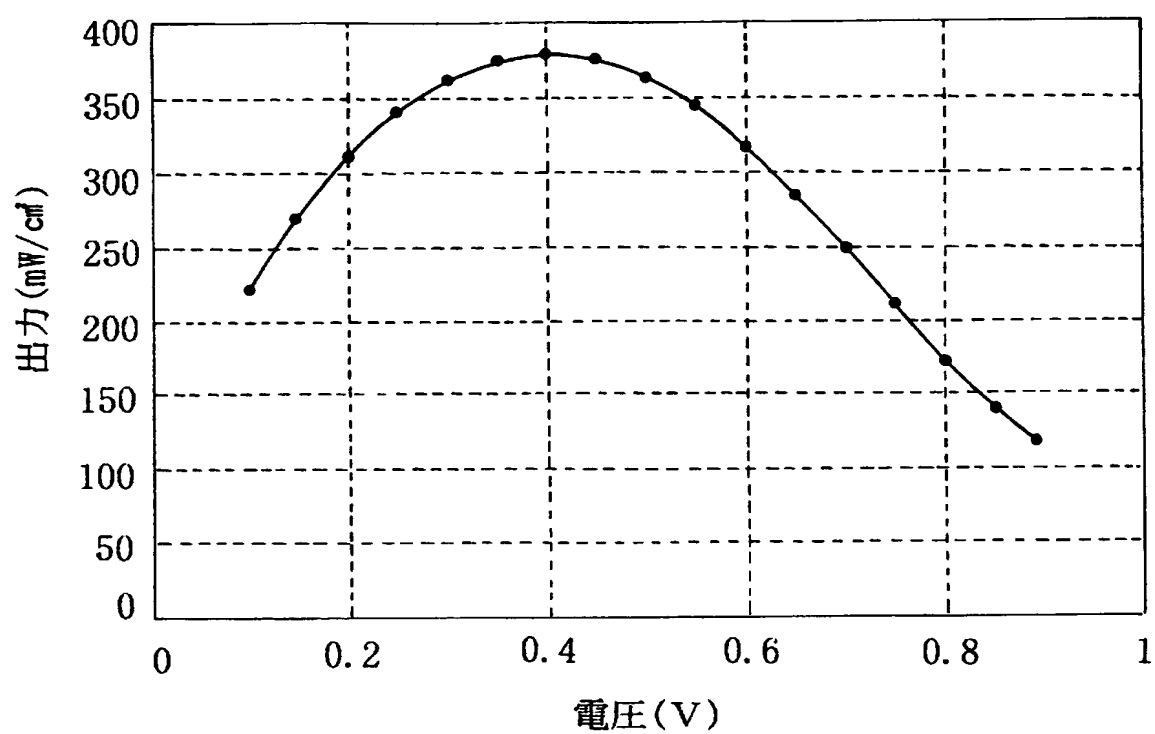
[図12]



[図13]

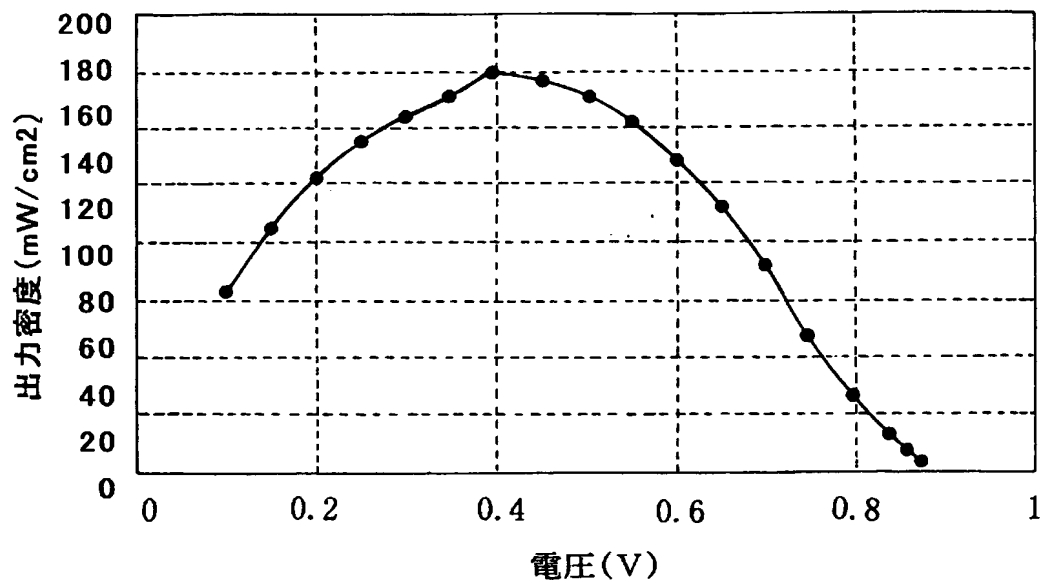


[図14]

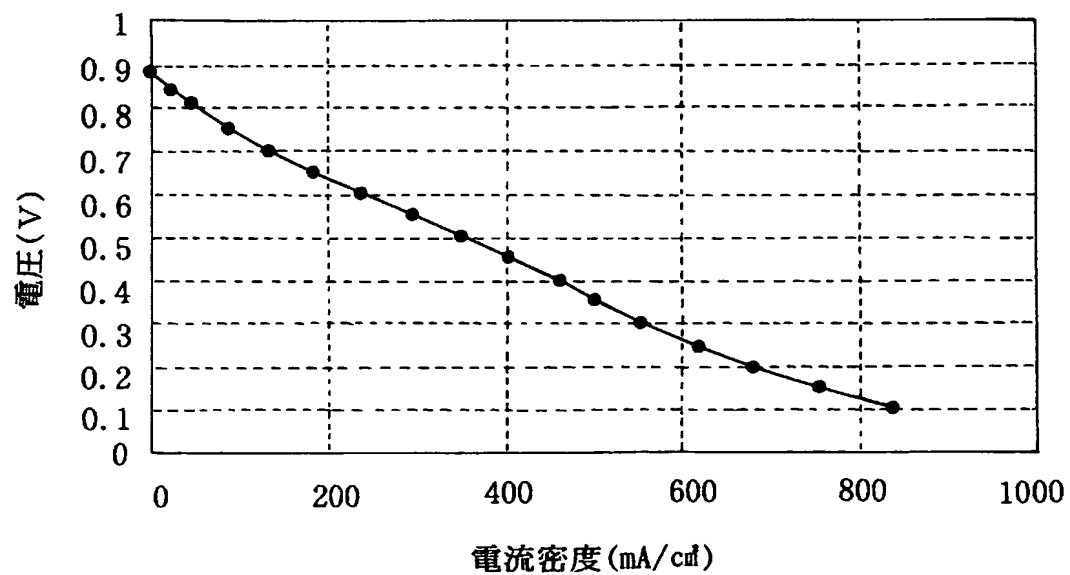


[図15]

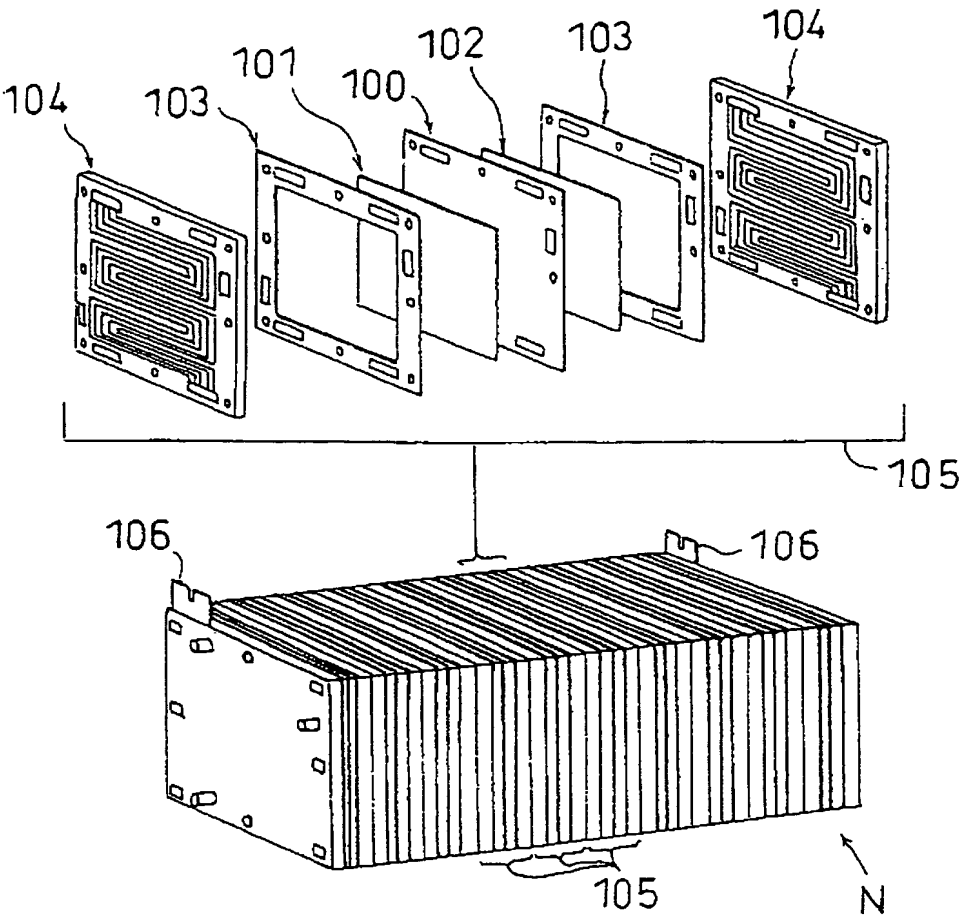
(a)



(b)



[図16]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/016953

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|--|
| Y A | JP 8-162145 A (The Kansai Electric Power Co., Inc.), 21 June, 1996 (21.06.96), Par. No. [0026]; Figs. 3, 4 (Family: none) | 1, 3-5, 8, 10, 11 2, 6, 7, 9, 12 |
| Y | JP 2002-175818 A (Honda Motor Co., Ltd.), 21 June, 2002 (21.06.02), Par. Nos. [0011] to [0015]; Fig. 4 & US 2002-86196 A1 | 1, 3-5, 8, 10, 11 |
| Y | JP 2003-178776 A (Toyota Motor Corp.), 27 June, 2003 (27.06.03), Par. No. [0012]; Fig. 3 & US 2003-64272 A1 | 1, 3-5, 8, 10, 11 |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
16 February, 2005 (16.02.05)

Date of mailing of the international search report
08 March, 2005 (08.03.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/016953

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| Y | JP 10-55813 A (Aisin Seiki Co., Ltd.), 24 February, 1998 (24.02.98), Par. No. [0012]; Fig. 1 (Family: none) | 1, 11 |
| A | JP 10-289722 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 27 October, 1998 (27.10.98), Fig. 4 (Family: none) | 1-12 |
| E, A | JP 2004-79193 A (Toyota Motor Corp.), 11 March, 2004 (11.03.04), & US 2004-28969 A | 1-12 |
| E, A | JP 2004-127711 A (Daido Steel Co., Ltd.), 22 April, 2004 (22.04.04), (Family: none) | 1-12 |

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2005年
 日本国登録実用新案公報 1994-2005年
 日本国実用新案登録公報 1996-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|---|--|
| Y A | JP 8-162145 A (関西電力株式会社) 1996. 06. 21, 【0026】、図3, 図4 (ファミリーなし) | 1, 3-5, 8, 10, 11 2, 6, 7, 9, 12 |
| Y | JP 2002-175818 A (本田技研工業株式会社) 2002. 06. 2 1, 【0011】～【0015】、図4 & US 2002-86196 A1 | 1, 3-5, 8, 10, 11 |
| Y | JP 2003-178776 A (トヨタ自動車株式会社) 2003. 06. 2 7, 【0012】、図3 & US 2003-64272 A1 | 1, 3-5, 8, 10, 11 |

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 16. 02. 2005

国際調査報告の発送日 08. 3. 2005

国際調査機関の名称及びあて先
 日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号 100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
 高木 康晴

4 X 9275

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

| C (続き) . 関連すると認められる文献 | | |
|-----------------------|--|------------------|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
| Y | JP 10-55813 A (アイシン精機株式会社) 1998. 02. 24, 【0012】、図1 (ファミリーなし) | 1, 11 |
| A | JP 10-289722 A (三洋電機株式会社) 1998. 10. 27, 図4, (ファミリーなし) | 1-12 |
| E A | JP 2004-79193 A (トヨタ自動車株式会社) 2004. 03. 1 1, & US 2004-28969 A | 1-12 |
| E A | JP 2004-127711 A (大同特殊鋼株式会社) 2004. 04. 22, (ファミリーなし) | 1-12 |

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.